# PCT

# WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM

OHP

# Internationales Büro INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 6:

B01D 53/90, 53/94

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer:

(43) Internationales
Veröffentlichungsdatum:

4. November 1999 (04.11,99)

WO 99/55445

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/DE99/01097

A1

(22) Internationales Anmeldedatum:

12. April 1999 (12.04.99)

(30) Prioritätsdaten:

198 18 448.4

24. April 1998 (24.04.98)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Wittelsbacherplatz 2, D-80333 München (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): WISSLER, Gerhard [DE/DE]; Helmunistrasse 46, D-93104 Sünching (DE). PAJONK, Günther [DE/DE]; Hellerwiese 7, D-96199 Zapfendorf (DE). WEIGL, Manfred [DE/DE]; Breitenfeldstrasse 12, D-93161 Viehhausen (DE). HOFMANN, Lothar [DE/DE]; Klosterstrasse 48, D-96264 Altenkunstadt (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: SIEMENS AKTIENGE-SELLSCHAFT; Postfach 22 16 34, D-80506 München (DE).

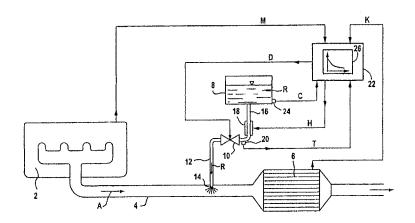
(81) Bestimmungsstaaten: JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

#### Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.

- (54) Title: METHOD AND DEVICE FOR CATALYTIC REDUCTION OF NITROGEN OXIDES IN THE WASTE GAS OF A COMBUSTION FACILITY
- (54) Bezeichnung: VERFAHREN UND VORRICHTUNG ZUR KATALYTISCHEN REDUZIERUNG VON STICKOXIDEN IM ABGAS EINER VERBRENNUNGSANLAGE



#### (57) Abstract

In order to ensure as high a conversion as possible of nitrogen oxide in a DeNOx catalyst (6) in a waste gas purification facility while preventing the reducing agent used for reduction from escaping into the environment, the density of the reducing agent solution (R) is taken into account when determining the volume of said reducing agent solution. A two-fold control of the density is carried out by measuring the temperature of the reducing agent solution (R) using a temperature sensor (20) and by regulating it using a tempering device (18).

#### (57) Zusammenfassung

Um bei einer Abgasreinigungsanlage zur Stickoxidreduzierung eine möglichst hohe Umsetzung der Stickoxide in einem De-NOx-Katalysator (6) zu gewährleisten und gleichzeitig ein Entweichen des zur Reduktion verwendeten Reduktionsmittels in die Umwelt zu verhindern, ist vorgesehen, bei der Bestimmung des zu dosierenden Volumens einer Reduktionsmittellösung (R) deren Dichte heranzuziehen. Die Dichte wird dabei in zweifacher Weise kontrolliert, indem die Temperatur der Reduktionsmittellösung (R) zum einen über einen Temperatursensor (20) gemessen und zum anderen mittels einer Temperiereinrichtung (18) eingestellt wird.

## LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
ΑT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
ΑU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
$\mathbf{AZ}$	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
ВВ	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
ВJ	Benin	ΙE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
СН	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
cz	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

### Beschreibung

Verfahren und Vorrichtung zur katalytischen Reduzierung von Stickoxiden im Abgas einer Verbrennungsanlage

5

25

30

35

Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zur katalytischen Umsetzung von Stickoxiden im Abgas einer Verbrennungsanlage, insbesondere im Abgas eines mit Luftüberschuß betriebenen Verbrennungsmotors, beispielsweise eines

10 Dieselmotors.

Bei der Verbrennung von fossilem Brennstoff wie Erdöl oder Kohle in einer Verbrennungsanlage, insbesondere von Dieselkraftstoff in einem Dieselmotor, entstehen unter anderem für die Umwelt schädliche Stickoxide. Um den Eintrag von Stickoxiden in die Umwelt zu vermindern, ist unter anderem bei der Kraftwerkstechnik der Einsatz eines in der Abgasleitung einer Verbrennungsanlage angeordneten Katalysators bekannt. Der Katalysator dient zur katalytischen Umwandlung der im Abgas enthaltenen Stickoxide in unbedenkliche Stoffe.

Bei einem mit Luftüberschuß betriebenen Verbrennungsmotor werden Stickoxide beispielsweise nach dem Verfahren der selektiven katalytischen Reduktion (SCR-Verfahren) aus dem Abgas entfernt. Dabei wird in das Abgas vor dem Durchströmen eines sogenannten SCR- oder DeNOx-Katalysators ein Reduktionsmittel eingebracht, das die im Abgas enthaltenen Stickoxide in Anwesenheit von Sauerstoff am Katalysator zu unschädlichem Stickstoff und Wasser umsetzt. Als Reduktionsmittel wird dabei in der Regel Ammoniak verwendet. Das Reduktionsmittel wird in das Abgas beispielsweise in Form einer Reduktionsmittellösung eingebracht, aus welcher das eigentliche Reduktionsmittel freigesetzt wird. Im Falle von Ammoniak ist eine solche Reduktionsmittellösung beispielsweise eine wäßrige Harnstofflösung. Siehe hierzu die Siemens-Firmenschrift: "SINOx, Stickoxidminderung für stationäre Dieselmotoren", 1997, Best.-Nr. A96001-U91-A232.

10

Bei der Stickoxidminderung nach dem SCR-Verfahren muß stets eine an die aktuelle Stickoxidemission angepaßte Reduktionsmittelmenge in das Abgas eingebracht werden. Damit wird einerseits eine hohe Umsatzrate der Stickoxide am Katalysator erzielt, und andererseits wird vermieden, daß zuviel Reduktionsmittel eingebracht wird, welches dann den Katalysator zusammen mit dem Abgas verläßt und in die Umwelt gelangt. Der Austritt von Reduktionsmittel in die Umwelt wird auch als Schlupf bezeichnet. Er ist insbesondere bei Verwendung von Ammoniak zu vermeiden, um eine zusätzliche Belastung der Umwelt zu verhindern.

Die Ermittlung der pro Zeiteinheit einzubringenden Menge an Reduktionsmittel gestaltet sich insbesondere bei instationär 15 betriebenen Verbrennungsanlagen schwierig. Solche instationär betriebene Verbrennungsanlagen sind beispielsweise im Kraftfahrzeugbereich eingesetzte Dieselmotoren, die mit häufigen Lastwechseln betrieben werden. Die Emission der Stickoxide kann daher innerhalb kurzer Zeitintervalle beträchtlich vari-20 ieren. In Folge dessen ist es notwendig, daß auch die zudosierte Menge an Reduktionsmittel sehr schnell variiert und genau eingestellt wird. Die Menge des einzubringenden Reduktionsmittels ist also bedarfsabhängig zu steuern. Der aktuelle Bedarf wird dabei anhand von Parametern ermittelt, die den Betriebszustand der Verbrennungsanlage charakterisieren. 25 Bei einem Dieselmotor sind solche Parameter beispielsweise Drehzahl, Drehmoment, Betriebstemperatur oder Kraftstoffverbrauch. Aus der DE-19 536 571 Al ist es bekannt, zusätzlich Parameter hinzuzuziehen, die den Betriebszustand des Kataly-30 sators charakterisieren. Diese Parameter sind beispielsweise die Speicherkapazität des Katalysators für das Reduktionsmittel, die Betriebstemperatur oder die katalytische Aktivität des Katalysators.

Aus den verschiedenen Parametern wird beispielsweise anhand eines Kennfelds die für die Umsetzung der Stickoxide benötigte Menge an Reduktionsmittel ermittelt. Für die Bestimmung

3

des pro Zeiteinheit zuzudosierenden Volumens der Reduktionsmittellösung sind bei der Verwendung einer Reduktionsmittellösung zudem deren Eigenschaften, beispielsweise deren Konzentration, mit zu berücksichtigen. In der Regel wird die
Menge an Reduktionsmittel so bestimmt, daß dem Katalysator
etwas weniger Reduktionsmittel zugeführt wird, als zur Umsetzung der Stickoxide notwendig ist, so daß Schlupf auf alle
Fälle vermieden ist. Der Katalysator wird also unterhalb der
theoretisch möglichen Umsatzrate betrieben. Die Umsatzrate
gibt den Anteil der am Katalysator reduzierten Stickoxide an.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren und eine Vorrichtung zur katalytischen Umsetzung von im Abgas einer Verbrennungsanlage enthaltenen Stickoxiden anzugeben, wobei ein Schlupf des Reduktionsmittels sicher vermieden und gleichzeitig eine hohe Umsatzrate der Stickoxide am Katalysator erzielt wird.

Gemäß der Erfindung wird zur Lösung der Aufgabe bei dem Verfahren zur katalytischen Reduzierung von Stickoxiden, insbesondere von Stickoxiden im Abgas eines mit Luftüberschuß betriebenen Verbrennungsmotors, ein Katalysator von dem Abgas durchströmt, vor dem Durchströmen des Katalysators wird in das Abgas eine Reduktionsmittellösung zudosiert und die pro Zeiteinheit zu dosierende Menge des gelösten Reduktionsmittels wird bedarfsabhängig bestimmt, wobei die Dichte der Reduktionsmittellösung zur Bestimmung des pro Zeiteinheit zu dosierenden Volumens der Reduktionsmittellösung herangezogen wird.

30

35

10

15

Die Erfindung geht von der Überlegung aus, daß bei einer volumetrischen Dosierung der Reduktionsmittellösung die zudosierte Menge an Reduktionsmittel von der Dichte der Reduktionsmittellösung beeinflußt wird. Dichteschwankungen treten in erster Linie bei Temperaturänderungen auf. Mit der Einbeziehung der Dichte wird die durch Dichteschwankungen hervorgerufene Ungenauigkeit bei der Dosierung weitgehend verhindert

4

und eine hohe Dosiergenauigkeit erreicht. Dadurch wird die gewünschte Umsatzrate möglichst genau erzielt, ohne daß Schlupf auftritt.

Als Reduktionsmittellösung wird vorzugsweise eine wäßrige Harnstofflösung verwendet. Die Harnstofflösung wird in das heiße Abgas eindosiert. Dabei wird aus dem gelösten Harnstoff das eigentliche Reduktionsmittel, nämlich der Ammoniak, freigesetzt. Das Ammoniak gelangt zusammen mit den Stickoxiden in den Katalysator, wo es an der katalytisch aktiven Fläche die Stickoxide zu Stickstoff reduziert.

Bevorzugt wird zur Bestimmung der Dichte die Temperatur der Reduktionsmittellösung gemessen und in Abhängigkeit von der aus der Temperatur abgeleiteten Dichte das zu dosierende Volumen der Reduktionsmittellösung gesteuert. Die Temperatur ist die wesentliche Bestimmungsgröße für die Dichte und kann in einfacher Weise durch gebräuchliche Temperatursensoren ermittelt werden. Da die Reduktionsmittellösung in flüssiger Form vorliegt und nahezu inkompressibel ist, ist die Dichte von Druckeinflüssen im wesentlichen unbeeinflußt.

Die Temperaturmessung kann bereits in einem Vorratsbehälter für die Reduktionsmittellösung oder bevorzugt unmittelbar vor einer Dosiereinrichtung zur volumetrischen Dosierung der Reduktionsmittellösung erfolgen. Mit der Bestimmung der Temperatur unmittelbar vor der Dosiereinrichtung wird dabei eine höhere Genauigkeit erreicht, da die tatsächliche Temperatur der Reduktionsmittellösung am Ort der Dosiereinrichtung ermittelt wird. Bei einer Temperaturmessung im oder am Vorratsbehälter können demgegenüber unter Umständen in einer zu der Dosiereinrichtung führenden Zuleitung Wärmeverluste auftreten, die bei der Ermittlung der Dichte zu berücksichtigen sind.

Das zu dosierende Volumen wird vorteilhafter Weise aus einer Kennlinie bestimmt, die die Abhängigkeit zwischen der Temperatur und der Dichte der Reduktionsmittellösung wiedergibt.

Das zu dosierende Volumen kann dadurch in einfacher Weise aus der Kennlinie abgelesen werden, und braucht nicht permanent rechnerisch ermittelt werden. Es ist daher ausreichend, die Temperatur-Dichte-Abhängigkeit nur einmal entweder experimentell oder rechnerisch zu bestimmen. Es ist dabei von Vorteil, in einem Speicherelement mehrere Kennlinien für verschiedene Reduktionsmittellösungen abzulegen. Die Reduktionsmittellösungen können sich beispielsweise hinsichtlich ihrer Konzentration oder ihrer Zusammensetzung unterscheiden. In der Regel wird als Reduktionsmittel Harnstoff und als Lösungsmittel Wasser verwendet.

In einer bevorzugten Weise wird die Reduktionsmittellösung temperiert, so daß ihre Dichte auf einen festgelegten Wert eingestellt wird, da bei einer vorgegebenen Temperatur die Dichte definiert ist. Der Vorteil bei der direkten Temperierung der Reduktionsmittellösung ist darin zu sehen, daß die Dichte der Reduktionsmittellösung nicht durch eine gesonderte Messung, beispielsweise einer Temperaturmessung, bestimmt werden muß.

25

30

Die Temperierung der Reduktionsmittellösung erfolgt dabei entweder im Vorratsbehälter für die Reduktionsmittellösung oder unmittelbar vor der Dosiereinrichtung. Die Anordnung einer Temperiereinrichtung unmittelbar vor der Dosiereinrichtung bietet den Vorteil, daß die eventuell auftretenden Wärmeverluste durch Abstrahlung zwischen Temperiereinrichtung und Dosiereinrichtung vernachlässigbar sind.

Die Temperierung der Reduktionsmittellösung ist neben der Bestimmung der Temperatur der Reduktionsmittellösung eine alternative oder zusätzliche Möglichkeit, um die Dichte der Reduktionsmittellösung zur Bestimmung des pro Zeiteinheit zu

PCT/DE99/01097

dosierenden Volumens der Reduktionsmittellösung heranzuziehen. Besonders vorteilhaft ist es, die beiden Möglichkeiten miteinander zu kombinieren, um eine hohe Dosiergenauigkeit zu erreichen. Durch die zusätzliche Messung der Temperatur wird eine höhere Genauigkeit bei der Kontrolle der Dichte erzielt. Dies kann insbesondere bei der Inbetriebnahme von Vorteil sein, wenn die Temperiereinrichtung die Reduktionsmittellösung noch nicht auf die vorgegebene Temperatur eingestellt hat.

10

Die Temperierung erfolgt bevorzugt mittels einer Temperiereinrichtung oder Heizung, und zwar insbesondere mittels eines
NTC-Heizelements. Das NTC-Heizelement ist ein elektrisches
Widerstands-Heizelement und dadurch charakterisiert, daß sein
Widerstand einen negativen Temperaturkoeffizient (NTC) aufweist, d.h. sein Widerstand und damit seine Heizleistung nehmen mit zunehmender Temperatur ab. Das NTC-Heizelement ist
also nahezu selbstregulierend, so daß sich damit in besonders
einfacher Weise eine gewünschte Temperatur in der Reduktionsmittellösung erreichen läßt, ohne daß eine aufwendige Steuerung der Heizung erforderlich ist.

Das NTC-Heizelement wird zweckmäßigerweise zugleich als Temperatursensor eingesetzt. Hierzu wird der Widerstand des NTC-Heizelements bestimmt, der eine eindeutige Funktion der Temperatur ist. Somit kann durch ein einziges Element zugleich die Reduktionsmittellösung auf eine vorgegebene Temperatur aufgeheizt und die momentane Temperatur der Reduktionsmittellösung unmittelbar bestimmt werden.

30

35

25

In einer bevorzugten Ausgestaltung wird die Konzentration der Reduktionsmittellösung zur Bestimmung des zu dosierenden Volumens herangezogen. Die Konzentration der Reduktionsmittellösung ist generell eine wesentliche Bestimmungsgröße für das zu dosierende Volumen der Reduktionsmittellösung, da die Konzentration ein Maß für die tatsächlich gelöste Menge an Reduktionsmittel ist.

25

Da die Konzentration Schwankungen unterworfen sein kann, ist es zweckmäßig, zusätzlich zu der Dichte auch die Konzentration zu bestimmen oder zu kontrollieren. Die Schwankungen in der Konzentration werden beispielsweise durch Verdunstungseffekte oder beim Nachtanken aufgrund herstellungsbedingter Unterschiede bei verschiedenen Reduktionsmittellösungen hervorgerufen. Die Konzentration wird beispielsweise durch ein Meßglied überwacht oder wird alternativ oder zusätzlich durch aktive Kontrolle auf einen vorgebbaren Wert eingestellt. Zur 10 aktiven Kontrolle wird die Reduktionsmittellösung beispielsweise auf eine vorgebbare Temperatur thermostatisiert. Sofern die Reduktionsmittellösung bei der vorgegebenen Temperatur als gesättigte Lösung vorliegt, stellt sich eine fest definierte Gleichgewichtskonzentration entsprechend dem Phasen-1.5 diagramm zwischen Reduktionsmittel und Lösungsmittel ein. Mit einer entsprechenden Thermostatisierung oder Temperierung der Reduktionsmittellösung wird daher in besonders vorteilhafter Weise sowohl ihre Konzentration als auch ihre Dichte festgelegt, so daß das zu dosierende Volumen sehr genau bestimmt 20 werden kann.

Die auf die Vorrichtung bezogene Aufgabe wird gemäß der Erfindung gelöst durch eine Vorrichtung zur katalytischen Reduzierung von Stickoxiden im Abgas einer Verbrennungsanlage, insbesondere im Abgas eines mit Luftüberschuß betriebenen Verbrennungsmotors, mit

- einer an die Verbrennungsanlage angeschlossenen Abgasleitung,
- einem Katalysator, der in der Abgasleitung angeordnet ist,
- 30 einem Vorratsbehälter für eine Reduktionsmittellösung,
  - einer mit dem Vorratsbehälter und der Abgasleitung verbundenen Dosiereinrichtung zur Dosierung der Reduktionsmittellösung in das Abgas und
- mit einem mit der Dosiereinrichtung verbundenen Kontrollsystem, welches zur bedarfsabhängigen Dosierung des Volumens
  der Reduktionsmittellösung unter Berücksichtigung deren
  Dichte ausgebildet ist.

Das Kontrollsystem ist dabei derart ausgebildet, daß es zur Kontrolle der Dichte der Reduktionsmittellösung geeignet ist. Der Begriff Kontrolle umfaßt hierbei sowohl das passive Überwachen oder Messen als auch das aktive Steuern oder Festlegen der Dichte der Reduktionsmittellösung.

Zur Kontrolle im Sinn von Überwachen umfaßt das Kontrollsystem vorteilhafterweise einen Temperatursensor, mit dem die Temperatur der Reduktionsmittellösung meßbar ist.

10

25

- Zur Kontrolle im Sinn von Steuern umfaßt das Kontrollsystem bevorzugt eine Temperiereinrichtung, mit der eine definierte Temperatur der Reduktionsmittellösung einstellbar ist.
- Weitere vorteilhafte Ausgestaltung der Vorrichtung sind den auf die Vorrichtung bezogenen Unteransprüchen zu entnehmen. Die im Hinblick auf das Verfahren dargelegten Vorteile gelten sinngemäß auch für die Vorrichtung.
- 20 Ausführungsbeispiele der Erfindung werden im folgenden anhand der Zeichnung näher erläutert. Es zeigen:
  - FIG 1 eine schematische Ansicht einer Abgasreinigungsanlage, bei der die Dichte der Reduktionsmittellösung unmittelbar vor einer Dosiereinrichtung kontrolliert wird und
  - FIG 2 ebenfalls eine Abgasreinigungsanlage in einer schematischen Ansicht, bei der die Dichte in einem Vorratsbehälter kontrolliert wird.
- Gemäß der FIG 1 ist die Abgasreinigungsanlage mit einer Verbrennungsanlage 2 verbunden und umfaßt eine daran angeschlossene Abgasleitung 4 für bei der Verbrennung von fossilem Brennstoff anfallendes Abgas A. Das Abgas A durchströmt einen in die Abgasleitung 4 geschalteten Katalysator 6, insbeson-
- dere einen DeNOx-Katalysator. Die Verbrennungsanlage 2 ist insbesondere ein mit Luftüberschuß betriebener Verbrennungsmotor, beispielsweise ein Dieselmotor.

9

In das Abgas A wird vor dessen Eintritt in den Katalysator 6 eine Reduktionsmittellösung R aus einem Vorratsbehälter 8 mittels einer Dosiereinrichtung 10 eindosiert. Die Dosiereinrichtung 10 ist beispielsweise ein Ventil, mit dem das in das Abgas A zudosierte Volumen der Reduktionsmittellösung R gesteuert wird. Die Reduktionsmittellösung R wird von der Dosiereinrichtung 10 über eine an die Abgasleitung 4 angeschlossene Dosierleitung 12 und eine am Ende der Dosierleitung 12 angeordnete Düse 14 in das Abgas A eingespritzt.

10

15

Als Reduktionsmittellösung R wird bevorzugt eine wäßrige Harnstofflösung verwendet, aus der nach der Einbringung in das heiße Abgas A Ammoniak als Reduktionsmittel freigesetzt wird. Das Ammoniak gelangt mit dem im Abgas A befindlichen Stickoxiden in den Katalysator A und reduziert an der katalytisch aktiven Fläche die Stickoxide im wesentlichen zu Stickstoff und Wasser.

Die Reduktionsmittellösung R wird über eine Zuleitung 16 der Dosiereinrichtung 10 aus dem Vorratsbehälter 8 zugeführt. An 20 der Zuleitung 16 ist unmittelbar vor der Dosiereinrichtung 10 eine Temperiereinrichtung 18 sowie ein Temperatursensor 20 angeordnet. Die Temperiereinrichtung 18 ist beispielsweise eine die Zuleitung 16 umfassende Heizmanschette, mit der die Temperatur der Reduktionsmittellösung R auf eine definierte 25 Temperatur gebracht wird. Die Temperiereinrichtung 18 kann alternativ auch in der Zuleitung 16 angeordnet sein, so daß ein intensiver Kontakt zwischen Temperiereinrichtung 18 und Reduktionsmittellösung R hergestellt ist. Die Temperiereinrichtung 18 ist bevorzugt derart ausgebildet, daß die Reduk-30 tionsmittellösung R an dem der Dosiereinrichtung 10 zugewandten Ende der Temperiereinrichtung die gewünschte Temperatur aufweist und von Temperaturschwankungen in der Umgebung der Temperiereinrichtung 18 unbeeinflußt bleibt. Hierzu ist die Temperiereinrichtung 18 beispielsweise als langgestreckter 35 Zylinder um die Zuleitung 16 ausgeführt. Die Temperierein-

PCT/DE99/01097

richtung 18 ist bevorzugt eine elektrische Heizung, und insbesondere ein NTC-Heizelement.

Mit der Temperiereinrichtung 18 wird eine Temperatur der Reduktionsmittellösung R eingestellt, die beispielsweise einige Grad bis einige 10 Grad über der Umgebungstemperatur liegt. Mit der Temperiereinrichtung 18 kann die Reduktionsmittellösung alternativ auch gekühlt werden. Die einzustellende Temperatur wird dabei derart gewählt, daß eine möglichst geringe Heizleistung oder Kühlleistung und damit ein möglichst geringer Energieverbrauch erforderlich ist. Die einzustellende Temperatur kann hierzu in Abhängigkeit der Umgebungstemperatur gewählt werden, die beispielsweise über einen nicht näher dargestellten Temperaturfühler ermittelt wird.

15

20

Der Temperiereinrichtung 18 nachfolgend ist der Temperatursensor 20 vor der Dosiereinrichtung 10 angeordnet. Mit dem Temperatursensor 20 wird die Temperatur der Reduktionsmittellösung R unmittelbar vor dem Eintritt in die Dosiereinrichtung 10 ermittelt. Als Temperatursensor 20 werden gebräuchliche Temperatursensoren verwendet, die die Temperatur möglichst schnell erfassen.

Wird als Temperiereinrichtung 18 ein NTC-Heizelement verwendet, so kann dies zugleich als Temperatursensor herangezogen werden. Bevorzugt wird das NTC-Heizelement in die Zuleitung 16 eingebaut, so daß ein intensiver Kontakt zwischen dem NTC-Heizelement und der Reduktionsmittellösung R besteht. Somit kann mit dem NTC-Heizelement die Reduktionsmittellösung R temperiert und ihre Temperatur gleichzeitig über eine Widerstandsmessung bestimmt werden.

Die zusätzliche Anordnung des Temperatursensors 20 zu der Temperiereinrichtung 18 ist im Hinblick auf eine hohe Dosiergenauigkeit besonders vorteilhaft. Temperiereinrichtung 18 und Temperatursensor 20 können in Kombination oder einzeln verwendet werden, um die Dichte der Reduktionsmittellösung zu kontrollieren und die Dichte bei der Bestimmung des zu dosierenden Volumens der Reduktionsmittellösung R heranzuziehen.

Zur Steuerung des Volumens der Reduktionsmittellösung R, das pro Zeiteinheit in das Abgas A eindosiert wird, ist ein Kontrollsystem vorgesehen, daß insbesondere eine Kontrolleinheit 22, die Temperiereinrichtung 18, den Temperatursensor 20, die Dosiereinrichtung 10 sowie ein Meßglied 24 zur Bestimmung der Konzentration der Reduktionsmittellösung R umfaßt. Da bei in-10 stationär betriebenen Verbrennungsmotoren pro Zeiteinheit sehr unterschiedliche Mengen an Stickoxiden im Abgas A auftreten, muß sich die zudosierte Menge an Reduktionsmittel dem jeweiligen Bedarf anpassen. Der Bedarf an Reduktionsmittel wird dabei in erster Linie aus Kenndaten M des Verbrennungs-1.5 motors 2 bestimmt. Neben den Kenndaten M des Verbrennungsmotors 2 werden optional als weitere wichtige Größen Kenndaten K des Katalysators 6 an die Kontrolleinheit 22 übermittelt. Aus diesen beiden Sätzen von Kenndaten bzw. Parametern wird der aktuelle Bedarf an Reduktionsmittel abgeleitet. Die Kon-20 trolleinheit 22 umfaßt hierzu beispielsweise ein Speicherelement 26, in dem ein Kennfeld für die unterschiedlichen Parametersätze abgelegt ist, und aus dem die aktuell benötigte Reduktionsmittelmenge bestimmt wird.

Ausgehend vom Bedarf an Reduktionsmittel wird das Volumen der Reduktionsmittellösung R bestimmt, das über die Dosierein-richtung 10 zudosiert wird. Hierzu gehen insbesondere die Konzentration C sowie die Dichte der Reduktionsmittellösung R ein. Die Konzentration C ist entweder beim Befüllen festgelegt, oder sie wird alternativ oder zusätzlich durch das Meßglied 24 ermittelt oder durch die Temperierung der Reduktionsmittellösung R definiert, sofern diese gesättigt ist.

Die Dichte der Reduktionsmittellösung R wird mit Hilfe der Kontrolleinheit 22 kontrolliert. Dabei umfaßt die Kontrolle zum einen die Messung der Temperatur der Reduktionsmittellösung R mit Hilfe des Temperatursensors 20 sowie zum anderen

die Einstellung der Temperatur der Reduktionsmittellösung R mit Hilfe der Temperiereinrichtung 18. Zur Berücksichtigung der Dichte wird vom Temperatursensor 20 ein Signal T an die Kontrolleinheit und von der Kontrolleinheit 22 ein Signal H 5 an die Temperiereinrichtung 18 übermittelt. Aufgrund des Signals H wird die Temperiereinrichtung 18 auf eine bestimmte Temperatur eingestellt. Ausgehend von der Konzentration und der Dichte der Reduktionsmittellösung R bestimmt die Kontrolleinheit 22 das zu dosierende Volumen. Hierzu ist in dem Speicherelement 26 beispielsweise eine Kennlinie oder ein Kennlinienfeld gespeichert, das die Abhängigkeit zwischen Temperatur und Dichte wiedergibt. Das ermittelte und pro Zeiteinheit zu dosierende Volumen wird als Signal D an die Dosiereinrichtung 10 übermittelt.

15

10

Abweichend zur FIG 1 sind gemäß FIG 2 die Temperiereinrichtung 18 sowie der Temperatursensor 20 jeweils im oder am Vorratsbehälter 8 angeordnet. Bei dieser alternativen Ausführungsform können über die Zuleitung 16 zu der Dosiereinrich-20 tung 10 Wärmeverluste auftreten. Die an der Dosiereinrichtung 10 vorliegende Temperatur der Reduktionsmittellösung R kann daher von der im Vorratsbehälter 8 gemessenen oder eingestellten Temperatur abweichen, so daß bei der Ermittlung der Dichte der Reduktionsmittellösung R eine Korrektur erforder-25 lich ist. Um die Wärmeverluste über die Zuleitung 16 möglichst gering zu halten, ist diese vorzugsweise mit einer Isolierung 28 umgeben.

Bei dem Verfahren und bei der Vorrichtung zur katalytischen 30 Reduzierung von Stickoxiden im Abgas der Verbrennungsanlage 2 ist der wesentliche Gesichtspunkt die Heranziehung der Dichte der Reduktionsmittellösung R zur Ermittlung des zu dosierenden Volumens. Die Dichte wird dabei alternativ oder gleichzeitig passiv überwacht sowie aktiv beeinflußt, indem die 35 Temperatur der Reduktionsmittellösung R ermittelt bzw. indem die Temperatur der Reduktionsmittellösung eingestellt wird. Die Dichte der Reduktionsmittellösung wird daher in zweifacher Hinsicht kontrolliert, um eine möglichst hohe Dosiergenauigkeit zu erreichen und einen Schlupf an Reduktionsmittel zu verhindern.

### Patentansprüche

15

20

- 1. Verfahren zur katalytischen Reduzierung von Stickoxiden im Abgas (A) einer Verbrennungsanlage (2), insbesondere im Abgas (A) eines mit Luftüberschuß betriebenen Verbrennungsmotors, bei dem
  - das Abgas (A) einen Katalysator (6) durchströmt,
  - dem Abgas (A) vor Durchströmen des Katalysators (6) eine Reduktionsmittellösung (R) zudosiert und
- die pro Zeiteinheit zu dosierende Menge des gelösten Reduktionsmittels bedarfsabhängig bestimmt wird, wobei
  - die Dichte der Reduktionsmittellösung (R) zur Bestimmung des pro Zeiteinheit zu dosierenden Volumens der Reduktionsmittellösung (R) herangezogen wird.
  - 2. Verfahren nach Anspruch 1, bei dem die Temperatur der Reduktionsmittellösung (R) gemessen, daraus ihre Dichte abgeleitet und in Abhängigkeit der Dichte das zu dosierende Volumen der Reduktionsmittellösung (R) gesteuert wird.
  - 3. Verfahren nach Anspruch 2, bei dem das zu dosierende Volumen aus einer Kennlinie bestimmt wird, die die Abhängigkeit zwischen Temperatur und Dichte wiedergibt.
- 4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei dem die Reduktionsmittellösung (R) temperiert und die Dichte eingestellt wird.
- 5. Verfahren nach Anspruch 4, bei dem die Temperierung mit-30 tels einer Heizung, insbesondere mittels eines sogenannten NTC-Heizelements, durchgeführt wird.
- 6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei dem die Konzentration der Reduktionsmittellösung (R) zur Bestim35 mung des zu dosierenden Volumens herangezogen wird.

PCT/DE99/01097 WO 99/55445

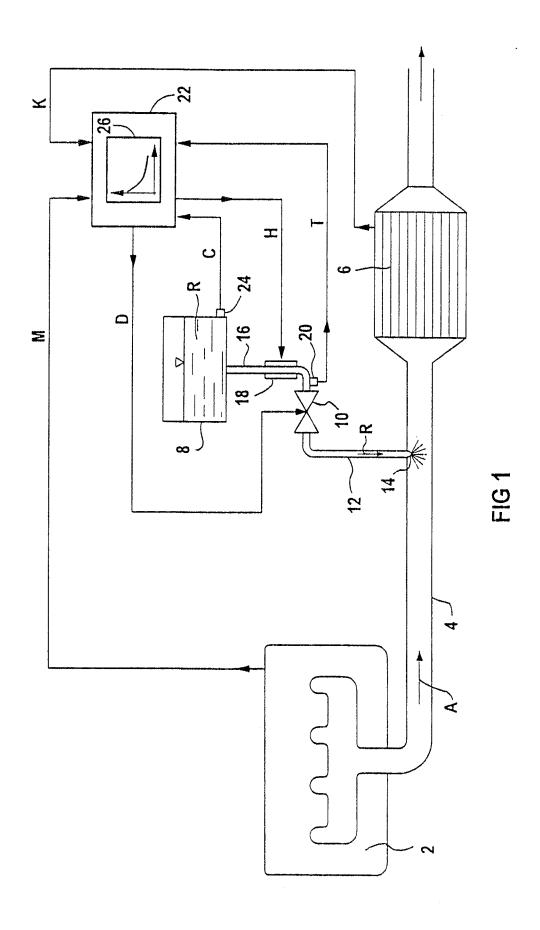
15

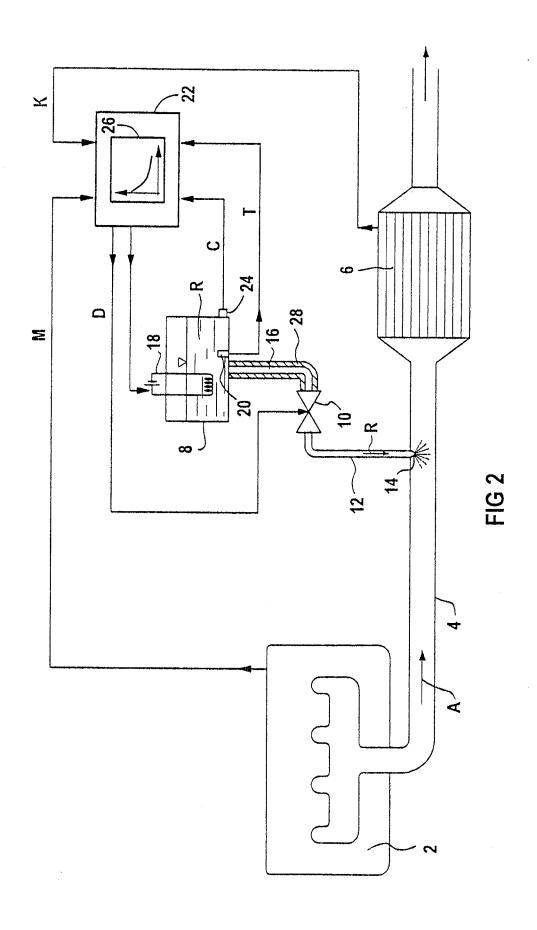
7. Vorrichtung zur katalytischen Reduzierung von Stickoxiden im Abgas (A) einer Verbrennungsanlage (2), insbesondere im Abgas eines mit Luftüberschuß betriebenen Verbrennungsmotors, mit

- 5 - einer an die Verbrennungsanlage (2) angeschlossenen Abgasleitung (4) für das Abgas (A),
  - einem Katalysator (6), der in der Abgasleitung (4) angeordnet ist,
- einem Vorratsbehälter (8) für eine Reduktionsmittellösung 10
  - einer mit dem Vorratsbehälter (8) und der Abgasleitung (4) verbundenen Dosiereinrichtung (10) zur Dosierung der Reduktionsmittellösung (R) in das Abgas (A) und
- mit einem mit der Dosiereinrichtung (10) verbundenen Kontrollsystem (18 bis 26), welches zur bedarfsabhängigen Do-15 sierung des Volumens der Reduktionsmittellösung (R) unter Berücksichtigung deren Dichte ausgebildet ist.
- 8. Vorrichtung nach Anspruch 7, bei der das Kontrollsystem (18 bis 26) einen Temperatursensor (20) umfaßt, mit dem die 20 Temperatur der Reduktionsmittellösung (R) meßbar ist.

25

- 9. Vorrichtung nach Anspruch 8, bei der das Kontrollsystem (18 bis 26) ein Speicherelement (26) umfaßt, in dem eine Kennlinie gespeichert ist, die die Abhängigkeit zwischen Temperatur und Dichte wiedergibt.
- 10. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 7 bis 9, bei der das Kontrollsystem (18 bis 26) eine Temperiereinrichtung (18) umfaßt, mit der eine definierte Temperatur der Reduktionsmit-30 tellösung (R) einstellbar ist.
- 11. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 7 bis 10, bei der die Temperiereinrichtung (18) eine Heizung, insbesondere ein 35 sogenanntes NTC-Heizelement, aufweist.





# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

rational Application No

		. 1			
A. CLASSI IPC 6	FICATION OF SUBJECT MATTER B01D53/90 B01D53/94				
According to	o International Patent Classification (IPC) or to both national class	ification and IPC			
	SEARCHED				
Minimum do IPC 6	ocumentation searched (classification system followed by classific $B01D$	ation symbols)			
Documentat	tion searched other than minimum documentation to the extent the	at such documents are includ	led in the fields searched		
Electronic di	ata base consulted during the international search (name of data	base and, where practical,	search terms used)		
C. DOCUM	ENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the	relevant passages	Relevant to claim No.		
P,X	EP 0 898 061 A (MAN NUTZFAHRZEU 24 February 1999 (1999-02-24) column 4, paragraph 24; claims figure 1 column 11, line 50 - line 57		1-3,7-9		
A	DE 44 32 577 A (SIEMENS AG) 14 March 1996 (1996-03-14) claims 1,5; figure 1		10,11		
Furti	her documents are listed in the continuation of box C.	χ Patent family n	nembers are listed in annex.		
"A" docume consid "E" earlier of filing of the citation citation "O" docume other if the citation of the citat	ent which may throw doubts on priority claim(s) or is cited to establish the publication date of another n or other special reason (as specified) ent referring to an oral disclosure, use, exhibition or means ent published prior to the international filing date but	"T" later document publi or priority date and cited to understand invention  "X" document of particul cannot be consider involve an inventive "Y" document of particul cannot be consider document is combi ments, such combi in the art.	<ul> <li>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</li> <li>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.</li> </ul>		
later than the priority date claimed "%" document member of the same patent family  Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report					
8	September 1999	16/09/19	999		
Name and r	mailing address of the ISA  European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  NL - 2280 HV Rijswijk  Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer  Bertram, H			

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

r national Application No

Patent document cited in search repor	t	Publication date		Patent family member(s)	Publication date
EP 898061	Α	24-02-1999	DE	19736384 A	25-02-1999
DE 4432577	Α	14-03-1996	CA WO EP JP US	2199737 A 9608639 A 0839264 A 9511807 T 5884475 A	21-03-1996 21-03-1996 06-05-1998 25-11-1997 23-03-1999

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

nationales Aktenzeichen PCT/DE 99/01097

a. klassifizierung des anmeldungsgegenstandes IPK 6 B01D53/90 B01D53/94					
North doctor	versities des Debestides difficulties (IDM) edecared des retinentes Montes	aiffication und der IDK			
	ernationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klas	Silikation and det IFN			
	RCHIERTE GEBIETE ter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbol	le)			
IPK 6	BOID				
Recherchier	te aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, sov	weit diese unter die recherchierten Gebiete	fallen		
Während de	r internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Na	ame der Datenbank und evtl. verwendete S	Suchbegriffe)		
C. ALS WE	SENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN				
Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe	e der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.		
Ρ,Χ	EP 0 898 061 A (MAN NUTZFAHRZEUGE 24. Februar 1999 (1999-02-24) Spalte 4, Absatz 24; Ansprüche 1 Abbildung 1	1-3,7-9			
	Spalte 11, Zeile 50 - Zeile 57				
Α	DE 44 32 577 A (SIEMENS AG) 14. März 1996 (1996-03-14) Ansprüche 1,5; Abbildung 1		10,11		
Wei	tere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu	X Siehe Anhang Patentfamilie			
° Besonder "A" Veröffe aber r "E" älteres Anme "L" Veröffe	intlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen ildedatum veröffentlicht worden ist intlichung, die geeignet ist, einen Prloritätsanspruch zweifelhaft er-	"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem oder dem Prioritätsdatum veröffentlich Anmeldung nicht kollidiert, sondern nu Erfindung zugrundellegenden Prinzips Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bede	t worden ist und mit der ir zum Verständnis des der oder der ihr zugrundeliegenden utung; die beanspruchte Erfindung chung nicht als neu oder auf		
scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)  "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist					
"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist					
Datum des	Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Re	echerchenberichts		
	3. September 1999	16/09/1999			
Name und	Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk	Bevollmächtigter Bediensteter			
	Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo ni, Fax: (+31-70) 340-3016	Bertram, H			

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffent.

gen, die zur selben Patentfamilie gehören

rationales Aktenzeichen PCT/DE 99/01097

Im Recherchenber angeführtes Patentdol		Datum der Veröffentlichung		litglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 898061	A	24-02-1999	DE	19736384 A	25-02-1999
DE 4432577	A	14-03-1996	CA WO EP JP US	2199737 A 9608639 A 0839264 A 9511807 T 5884475 A	21-03-1996 21-03-1996 06-05-1998 25-11-1997 23-03-1999